

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 12 March 2001 (12.03.01)	
International application No. PCT/DE00/02071	Applicant's or agent's file reference 99P3470P
International filing date (day/month/year) 26 June 2000 (26.06.00)	Priority date (day/month/year) 09 July 1999 (09.07.99)
Applicant JANSING, Thomas	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
18 December 2000 (18.12.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Maria Kirchner Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 99P3470P	<table style="width: 100%;"> <tr> <td style="width: 50%;">WEITERES VORGEHEN</td> <td style="width: 50%;">siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5</td> </tr> </table>	WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5
WEITERES VORGEHEN	siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5		
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 00/ 02071	<table style="width: 100%;"> <tr> <td style="width: 50%;"> Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/06/2000 </td> <td style="width: 50%;"> (Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 09/07/1999 </td> </tr> </table>	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/06/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 09/07/1999
Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/06/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 09/07/1999		
Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT			

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 4 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfindung

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der Zusammenfassung

☐ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☒ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der Zeichnungen ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ keine der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

Feld III

WORTLAUT DER ZUSAMMENFASSUNG (Fortsetzung von Punkt 5 auf Blatt 1)

Die Zusammenfassung wird wie folgt geändert:
Zeile 1: "Die Erfindung betrifft" weglassen.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 H01M8/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 42 37 602 A (SIEMENS AG) 11. Mai 1994 (1994-05-11) Ansprüche 1,3,6,7,11 Spalte 3, Zeile 45 - Zeile 62 Spalte 5, Zeile 41 - Zeile 51 Spalte 7, Zeile 6 - Zeile 33	1,2,4
Y	---	5-8
Y	DE 298 02 444 U (SIEMENS AG) 1. April 1999 (1999-04-01) Ansprüche 1-4; Abbildung 1 Seite 3, Absatz 5 - Absatz 6 Seite 2, Absatz 3	5-8
X	---	1-3,5-8
A	DE 195 17 443 A (MOTOREN TURBINEN UNION) 14. November 1996 (1996-11-14) Ansprüche 1,2	4

	---/---	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

31. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

07/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3018

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 338 823 A (TOA NENRYO KOGYO KK) 25. Oktober 1989 (1989-10-25) Seite 6, Zeile 41 - Zeile 46 ---	4
A	DE 40 16 157 A (ASEA BROWN BOVERI) 13. Dezember 1990 (1990-12-13) Spalte 10, Zeile 28 - Spalte 11, Zeile 18; Beispiel 1 ---	1
P,A	DE 198 36 352 A (SIEMENS AG) 17. Februar 2000 (2000-02-17) Spalte 3, Zeile 43 - Zeile 48; Ansprüche 1,2; Abbildung 1 ---	1,3
A	WO 99 13522 A (JAFFREY DONALD ; CERAMIC FUEL CELLS LTD (AU)) 18. März 1999 (1999-03-18) Seite 11, Zeile 25 - Zeile 28 ---	3
A	US 5 064 734 A (NAZMY MOHAMED) 12. November 1991 (1991-11-12) Anspruch 1 -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/JP00/02071

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4237602 A	11-05-1994	WO 9411913 A EP 0667042 A JP 8502851 T NO 951780 A	26-05-1994 16-08-1995 26-03-1996 05-05-1995
DE 29802444 U	01-04-1999	AU 3246899 A WO 9941795 A	30-08-1999 19-08-1999
DE 19517443 A	14-11-1996	NONE	
EP 0338823 A	25-10-1989	JP 2177265 A JP 2037669 A DE 68917192 D DE 68917192 T US 4950562 A JP 2050983 A JP 2604437 B	10-07-1990 07-02-1990 08-09-1994 17-11-1994 21-08-1990 20-02-1990 30-04-1997
DE 4016157 A	13-12-1990	NONE	
DE 19836352 A	17-02-2000	AU 6461499 A WO 0010214 A	06-03-2000 24-02-2000
WO 9913522 A	18-03-1999	AU 8964898 A EP 1019974 A	29-03-1999 19-07-2000
US 5064734 A	12-11-1991	EP 0424732 A JP 3155046 A	02-05-1991 03-07-1991

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

57

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 99P3470P	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE00/02071	International filing date (day/month/year) 26 June 2000 (26.06.00)	Priority date (day/month/year) 09 July 1999 (09.07.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 8/02		
Applicant SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input checked="" type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input checked="" type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 18 December 2000 (18.12.00)	Date of completion of this report 18 October 2001 (18.10.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE00/02071

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
 pages 1-7, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
 pages _____, filed with the demand
 pages 1-7, filed with the letter of 21 September 2001 (21.09.2001)
- ☒ the drawings:
 pages 1/1, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

Continuation of: Box I.6.

Amendments

The original Claims 1 and 2 have been combined.
The additional feature relating to good electrical contacting in the last three lines of Claim 1 can be found on page 3, lines 24-26 and page 4, lines 15-22 of the description.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE00/02071

II. Priority

1. ☐ This report has been established as if no priority had been claimed due to the failure to furnish within the prescribed time limit the requested:
- ☐ copy of the earlier application whose priority has been claimed.
 - ☐ translation of the earlier application whose priority has been claimed.
2. ☐ This report has been established as if no priority had been claimed due to the fact that the priority claim has been found invalid.

Thus for the purposes of this report, the international filing date indicated above is considered to be the relevant date.

3. Additional observations, if necessary:

SEE SEPARATE SHEET

Supplemental Box

(To be used when the space in any of the preceding boxes is not sufficient)

Continuation of: BOX II.3.

Priority

The priority is valid. Consequently, document
DE-A-198 36 352 does not have to be taken into
consideration.

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-7	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Reference is made to the following documents:

D1: DE-A-42 37 602

D2: DE-A-195 17 443

D3: DE-A-40 16 157.

- (i) Document D1 (see, in particular, Claims 6 and 11) discloses a high-temperature fuel cell stack as per the subject matter of the preamble to the present Claim 1, in which the metallic grid is coated with anode contact material comprising one or more of the components Ru, Ni, NiO or nickel cermets and yttrium-stabilised zirconium oxide.

The metallic grid is oxidation-protected since

-Ru or Ni is oxidised instead of the grid

or

-NiO or Ni cermets and yttrium-stabilised zirconium oxide (Y_2O_3/ZrO_2) are already

oxidised and therefore provide an oxidation-resistant protective layer for the base material of the grid.

- (ii) Structure 2A of the current collector in Figure 2a of document D2 is formed using nickel-plated noble steel wire. Although Ni is oxidised in air, the Ni layer continues to provide oxidation protection for the grid per se.
- (iii) Claim 6 of document D3 discloses that the current collectors (6 and 7) are formed from materials such as silicon carbide, tin oxide, La/Mn perovskite or **Ni/ZrO₂** cermet. Such materials have oxidation protection and oxidation resistance.

However, neither Ru or Ni (D1 and D2) or the Ni in the Ni and yttrium-stabilised zirconium oxide (Y₂O₃/ZrO₂) cermets (D1 and D3) can be considered to be oxidation-**resistant** per se. This has the disadvantage that the thickness and flexibility of the grid change. Consequently, although NiO (D1) is already oxidised and would therefore be resistant to further oxidation, it cannot guarantee good electrical contacting, since NiO is associated with a high contact resistance.

The silicon carbide, tin oxide and La/Mn perovskite in document D3 are oxidation-resistant and conductive. Nevertheless, D3 teaches that the current collectors on the anode side **consist of** said materials, which rules out an additional coating. This has the disadvantage per se that the collectors

are at least more expensive and less flexible than the coated metal grids of the present invention.

Claim 1 therefore meets the requirements of PCT Article 33(2) to (4).

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

(i) Claim 6 should read "... Cr_3C_2 ".

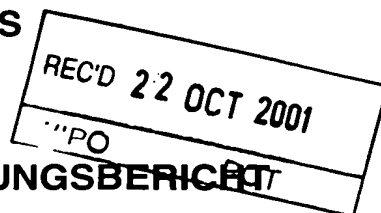
(ii) The description has not been brought into line.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 1999P03470WO	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/02071	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 26/06/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 09/07/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK H01M8/02		
Anmelder SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT et al.		



1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☒ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☒ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 18/12/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 18.10.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Fitzpatrick, J Tel. Nr. +49 89 2399 8570 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-7 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-7 eingegangen am 21/09/2001 mit Schreiben vom 20/09/2001

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE00/02071

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
siehe Beiblatt

II. Priorität

1. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da folgende angeforderte Unterlagen nicht innerhalb der vorgeschriebenen Frist eingereicht wurden:
- ☐ Abschrift der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist.
 - ☐ Übersetzung der früheren Anmeldung, deren Priorität beansprucht worden ist.
2. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung der beanspruchten Priorität erstellt worden, da sich der Prioritätsanspruch als ungültig herausgestellt hat.

Für die Zwecke dieses Berichts gilt daher das obengenannte internationale Anmeldedatum als das maßgebliche Datum.

3. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
siehe Beiblatt

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-7
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:
siehe Beiblatt

Sektion I.6: Änderungen

Die ursprünglichen Ansprüche 1 und 2 wurden zusammengefügt. Das zusätzliche Merkmal bezüglich einer guten elektrischen Kontaktierung der letzten drei Zeilen des Anspruchs 1 sind effektiv aus der Beschreibung auf Seite 3, Zeilen 24-26 und Seite 4, Zeilen 15-22 zu entnehmen.

Sektion II.3: Priorität

Dies ist gültig. Insofern muß das Dokument DE 198 36 352 nicht berücksichtigt werden.

Sektion V.2: Zitierungen und Erklärungen

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: DE 42 37 602

D2: DE 195 17 443

D3: DE 40 16 157

(i) Dokument D1 (siehe vor allem die Ansprüche 6 und 11) offenbart ein HTBZ-Stapel gemäß dem Gegenstand des Oberbegriffs des vorliegenden Anspruchs 1 und wobei das metallische Netz mit Anodenkontaktmaterial beschichtet ist, welches Anodenkontaktmaterial einen oder mehrere der Bestandteile Ru, Ni, NiO oder umfaßt. Insofern ist das metallische Netz oxidationsgeschützt, weil

- statt das Netz, Ru oder Ni oxidiert wird

oder

- NiO oder Cermets aus Ni und Yttrium-stabilisiertem Zirkonoxid (Y_2O_3/ZrO_2) schon oxidiert sind und bieten deshalb eine oxidationsresistente Schutzschicht **für das Grundmaterial des Netzes** an.

(ii) Die Struktur 2A des Stromkollektors der Figur 2a des Dokuments D2 ist mit Ni plattiertem Edelstahldraht gebildet. Obwohl Ni im Luft oxidiert wird, ist die Ni Schicht immer noch ein Oxidationsschutz für das Netz als sich.

(iii) Anspruch 6 des Dokuments D3 offenbart, daß die Stromkollektoren 6 und 7 aus

Werkstoffe wie Siliziumkarbid, Zinnoxid, La/Mn-Perowskit oder **Ni/ZrO₂** Cermet gebildet werden. Solche Stoffe haben einen Oxidationsschutz sowie als auch einen Oxidationsresistenz.

Trotzdem jedoch können Ru oder Ni (D1 and D2) sowie der Ni in den aus Ni und Yttrium-stabilisiertem Zirkonoxid (Y₂O₃/ZrO₂) Cermets(D1 und D3) an sich nicht als oxidations**resistent** betrachtet werden. Dies hat den Nachteil, daß die Dicke und Flexibilität des Netzes sich ändern werden. Dazu obwohl NiO (D1) schon oxidiert ist, und deshalb gegenüber weitere Oxidation resistent wäre, kann diese keine gute elektrische Kontaktierung gewährleisten, da NiO mit einem hohen Übergangswiderstand verbunden ist.

Die Siliziumkarbid, Zinnoxid und La/Mn Perowskit des Dokuments D3 sind Oxidationsresistent sowie leitend. Trotzdem lehrt D3, daß die Stromkollektor an der Anodenseite **aus** diese Werkstoffe **bestehen**, was eine zusätzliche Beschichtung ausschließt. Dies an sich führt zum Nachteil, daß die Kollektoren mindestens teurer und weniger flexibel als die beschichteten Metalnetze der vorliegenden Erfindung wären.

Anspruch 1 erfüllt somit die Erfordernisse der Artikeln 33(2)-(4) PCT.

Sektion VII: Bestimmte Mängel

(i) Anspruch 6 hätte "... Cr₃C₂" gelesen werden sollen

(ii) Die Beschreibung wurde nicht angepaßt.

Ansprüche

1. Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit
schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2),
5 Elektrolyten (3),
Anoden (4) und
Interkonnektorplatten (5, 5') sowie
mindestens einem metallischen Netz (6, 6'),
das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur
10 flexiblen Kontaktierung eingefügt ist,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t,
daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') durch eine
oxidationsresistente Schutzschicht (7) beschichtet und damit
oxidationsgeschützt ist,
15 wobei die Schutzschicht (7) eine gute elektrische
Kontaktierung zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5)
ermöglicht.
2. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1,
20 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß
das Netz (6, 6') ein beschichtetes Nickelnetz ist.
3. Brennstoffzelle nach Anspruch 1 oder 2,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß
25 das Netz (6, 6') ein beschichtetes Edelstahlnetz ist.
4. Brennstoffzelle nach den Anspruch 2 oder 3,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß
die Schutzschicht (7) Chrom enthält.
30
5. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche
2 - 4, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß
die Schutzschicht (7) aus Chromcarbid besteht.
- 35 6. Brennstoffzelle nach Anspruch 5,
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, daß
als Chromcarbid C_3C_2 , CrC , Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet wird.

7. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet, daß
5 die Schutzschicht (7) eine Dicke (d) von etwa 0,1 - 10 μm
aufweist.

Beschreibung

Oxidationsgeschützte elektrische Kontaktierung auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle

5

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den weiteren Merkmalen des Oberbegriffs des Patentanspruchs 1.

10 Es ist bekannt, daß die Hintereinanderschaltung mehrerer Brennstoffzellen einen Brennstoffzellenstapel ergibt (in der Fachliteratur auch als Brennstoffzellenstack bezeichnet), welcher der Reihenfolge nach aus einer Interkonnektorplatte, einer Schutzschicht, einer Kontaktschicht, einer Kathode, ei-

15 nem Elektrolyten, einer Anode, einer weiteren Kontaktschicht sowie einer weiteren Interkonnektorplatte besteht. Die Interkonnektorplatte mit der jeweils aufgespritzten Schutz- und Kontaktschicht bildet eine Einheit. Kathode, Elektrolyt und Anode bilden die Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Die entspre-

20 chenden Einheiten sind schichtweise parallel aufeinander gelegt sind und sich in der derselben Reihenfolge mehrmals wiederholen.

Kathode, Elektrolyt und Anode bilden eine Elektrolyt-Elektro-

25 den-Einheit. Dabei bildet jeweils eine zwischen benachbarten Interkonnektorplatten liegende Elektrolyt-Elektroden-Einheit mit den beidseitig an der Elektrolyt-Elektroden-Einheit unmittelbar anliegenden Kontakt- und Schutzschichten eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle, zu der auch noch die an der

30 Schutzschicht bzw. den Kontaktschichten anliegenden Seiten jeder der beiden Interkonnektorplatten gehören. Die Interkonnektorplatten bestehen üblicherweise aus CrFe5 mit 1 % Y-Oxid, einer sogenannten ODS-Legierung.

35 In die Interkonnektorplatte sind Gaskanäle eingebracht, durch die zum einen das Brenngas z.B. Wasserstoff oder Methan (Erdgas) und zum anderen Sauerstoff bzw. Luft hindurchgeleitet

wird. Der Wasserstoff wird dabei an die Anodenseite, der Sauerstoff bzw. die Luft an die Kathodenseite geleitet. Die Hindurchleitung dieser Gase geschieht mit relativ geringem Überdruck von kleiner 1 bar.

5

Das planare Konzept der Hochtemperatur-Brennstoffzelle verlangt eine möglichst vollflächige Kontaktierung der Elektroden in beiden Gasräumen. Auf der Kathodenseite wird die Kontaktierung der Elektrode durch eine Kontaktschicht aus La-Perowskit gewährleistet, z.B. $\text{La}_0.8\text{Sr}_{0.2}\text{O}_{0.8}\text{MnO}_3$. Dieser Perowskit ist an Luft stabil. Auf der Brenngasseite dagegen gestaltet sich die Kontaktierung der Elektrode, also der Anode, schwieriger. Die vollständige Kontaktierung der Anode ist jedoch wegen der geringen Querleitfähigkeit der Anode notwendig. Die Anode wird im Siebdruckprozeß hergestellt und ist daher nicht vollflächig eben, weshalb eine flexible Kontaktierung erforderlich ist, die sehr gut elektrisch leitend ist und deren Beständigkeit über eine Betriebsdauer von etwa 40.000 h gewährleistet sein muß

20

Der Stand der Technik sieht vor, als flexible Kontaktierungen Nickelnetze einzusetzen. So werden beispielsweise ein feinmaschigeres und ein grobmaschigeres Nickelnetz übereinander gelegt, miteinander punktverschweißt, so daß eine flexible Zwischenlage mit einer guten Kontaktierung geschaffen wird.

25

Als Nachteil hat sich beim Stand der Technik herausgestellt, daß sowohl beim Verlöten der Brennstoffzellenstapel als auch beim Betrieb der Brennstoffzelle bzw. des Brennstoffzellenstacks im direkten Kontaktbereich Nickelnetz/CrFe5 eine Oxidschicht aufwächst, die im nicht stoffschlüssigen Kontakt aus Cr_2O_3 (Cr_xO_y) und im stoffschlüssigen Kontakt wahrscheinlich

30

aus einem CrNi-Spinell besteht. Diese Oxidschichten sind maßgeblich verantwortlich für die zu hohen Serienwiderstände der Hochtemperaturbrennstoffzellen. Die elektrische Leistung wird dadurch stark negativ beeinflusst.

35

Außerdem oxidiert das Nickelnetz beim Verlöten des Brennstoffzellenstacks mit einem Glaslot an Luftatmosphäre an der Oberfläche der Drähte einige μm in das Drahtinnere hinein. Durch die Bildung von Nickel-II-Oxid (NiO), das ein etwa 16 % größeres Volumen als Nickel aufweist, erfolgt eine Dickenzunahme des gesamten Netzpaketes um etwa 10 - 40 μm (je nach Lötbedingungen). Die Dickenzunahme beträgt im oxidierten Bereich des Drahtes mehr als 16 %, da das entstandene NiO porös ist. Bei der Oxidierung versintern die Nickelnetze sowie deren Drähte miteinander. Bei der späteren Reduktion des Nickelnetzes wird die ursprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt bzw. unter Umständen sogar noch reduziert.

Bei dieser Reduzierung versintern die Nickeldrähte miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität als auch eine Reduzierung der Dicke eintritt, die unerwünscht ist. Die Dickenreduzierung kann außerdem zu Kontaktabrissen führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den Merkmalen des Oberbegriffs des Patentanspruchs 1 derart weiterzubilden, daß die Reduzierung der Dicke und der Flexibilität des/der Nickelnetze(s) vermieden wird, so daß eine möglichst vollständige Kontaktierung der Anode und der Interkonnektorplatte möglich ist.

Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Patentanspruchs 1 gelöst. Vorteilhafte Weiterbildungen der Brennstoffzelle ergeben sich aus den Unteransprüchen 2 - 8.

Als Kern der Erfindung wird es angesehen, daß zur flexiblen Kontaktierung zwischen Anode und Interkonnektorplatte mindestens ein metallisches Netz, das oxidationsgeschützt ist, eingefügt ist.

Derartige Netze als Kontaktschicht haben den Vorteil, daß diese nicht mehr oxidieren können, so daß auch die Dickenzunahme entfällt. Indem keine Oxidation stattgefunden hat, ist auch kein Reduktionsvorgang der metallischen Netze notwendig und die damit verbundenen Nachteile, wie z.B. Kontaktabrisse bei der Dickenreduzierung oder Flexibilitätseinbußen, entstehen nicht. Aufgrund des nicht stattfindenden Wechselprozesses Oxidation/Reduktion bleibt die ursprüngliche Dicke und Flexibilität der oxidationsgeschützten Netze erhalten, so daß eine gut kontaktierende Kontaktschicht zwischen Anode und Interkonnektor geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickereduzierung der metallischen Netze mit fortlaufender Betriebsdauer verhindert.

Zweckmäßigerweise sind die metallischen Netze mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Die metallischen Netze, z.B. Nickelnetze, bleiben auf diese Weise sowohl in ihrer Zusammensetzung als auch in ihren mechanischen und elektrischen Eigenschaften unbeeinflusst, d.h. u.a. sie bleiben weitgehend flexibel, führen keine Dickenänderung herbei und behalten im wesentlichen ihre vorteilhaften Eigenschaften bei. Vorteilhaft ist dabei, daß vor dem Einbringen als flexible Kontaktschicht die metallischen Netze dem Beschichtungsprozeß unterzogen werden. Die Zusammenfügung mit den anderen Bauteilen sowie das Verlöten ist anschließend in üblicher Weise durchzuführen.

Als metallische Netze können beschichtete Nickelnetze vorgesehen sein. Die Nickelnetze erfüllen dabei die Anforderungen hinsichtlich der Flexibilität als auch der elektrischen Leitfähigkeit.

Als metallische Netze können auch beschichtete Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche die Eigenschaft haben, daß sie nur oberflächlich bis in eine Tiefe von ca. 5 μm oxidieren. Die Edelstahlnetze sind dabei ebenfalls mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Ein weiterer Vorteil der

Edelstahlnetze besteht darin, daß deren thermischer Ausdehnungskoeffizient an das thermische Verhalten der Komponenten des Brennstoffzellenstacks gut angepaßt ist. Vor allem beim Hochtemperaturbetrieb der Brennstoffzelle ist diese Eigenschaft von erheblichem Vorteil.

Vorteilhafterweise enthält die Schutzschicht Chrom und ist damit an die chemische Zusammensetzung der Interkonnektorplatte angepaßt.

10

Die Schutzschicht besteht vorteilhafterweise aus Chromcarbid, welches in hohem Maße elektrisch leitend ist und sehr gut am metallischen Netz haftet. Eine Chromcarbidschicht ist außerdem sehr korrosionsbeständig gegen entsprechende Sauerstoffpartialdrücke auf der Brenngasseite. Ferner sind diese Schichten stabil unter Verwendung von Methan bzw. kohlestämmigen Gasen, welche spätere Einsatzmedien auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle sind.

15

Ein weiterer Vorteil der Beschichtung mit Chromcarbid besteht darin, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektoplaten hindurch geleitet werden, geringe Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden. Die Chromcarbidschicht ist daher thermodynamisch besonders günstig.

25

Als Chromcarbid können z.B. C_3C_2 , CrC , Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet werden.

30

Es ist auch möglich, daß die Schutzschicht der metallischen Netze aus Chromnitrid besteht.

35

Zweckmäßigerweise weist die Schutzschicht eine Dicke d von 0,1 - 10 μm auf, so daß einerseits ein ausreichender Oxidationsschutz vorhanden ist und andererseits die Flexibilität der metallischen Netze kaum eingeschränkt wird.

Die Erfindung ist anhand eines vorteilhaften Ausführungsbeispiels in den Zeichnungsfiguren näher erläutert. Diese zeigen:

5 FIG 1 eine schematische Querschnittsdarstellung der Schichten einer Brennstoffzelle sowie

FIG 2 eine vergrößerte, schematische Querschnittsdarstellung eines beschichteten Nickelnetzes.

10

Der Brennstoffzellenstapel der Brennstoffzelle 1 entsprechend der schematischen Darstellung in FIG 1 besteht aus einer Interkonnektorplatte 5', einer Schutzschicht 8, einer Kontaktschicht 9, einer Kathode 2, einem Elektrolyten 3, einer Anode 15 4, zwei aufeinanderliegenden Nickelnetzen 6, 6' sowie einer Interkonnektorplatte 5, wobei diese Bauteile schichtweise aufeinander parallel angeordnet sind. Das Nickelnetz 6 ist dünner als das Nickelnetz 6'.

20 Die Nickelnetze 6, 6' sind oxidationsgeschützt, um eine Oxidation dieser Netze, welche üblicherweise beim Verlöten des gesamten Brennstoffzellenstacks auftritt, zu vermeiden. Die Oxidation der Nickelnetze ist mit einer Dickenzunahme verknüpft, wobei bei dem späteren Reduktionsvorgang die ursprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt wird. Dies 25 kann zu Kontaktabrissen führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können. Außerdem versintern die Nickeldrähte nach der Reduzierung miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität resultiert. Die oxidationsgeschützten Netze vermeiden demnach den Oxidations-/Reduktionsprozeß 30 des Netzpaketes und die damit verbundenen Nachteile. Die ursprüngliche Flexibilität sowie die Dicke der Netze kann beibehalten werden, so daß eine vollflächige Kontaktierung von Anode 4 und der Kontaktschicht der Nickelnetze 6, 6' sowie 35 der Interkonnektorplatte 5 geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickenreduzierung der Nickelnetze 6, 6' beim Betrieb der Brennstoffzelle 1 verhindert.

Wie in FIG 1 und FIG 2 verdeutlicht, sind die Nickelnetze 6, 6' mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht 7 beschichtet. Diese Beschichtung kann vor dem Zusammenbau der einzelnen Komponenten vorgenommen werden. Die Nickelnetze 6, 6' werden somit in ihren ursprünglichen, vorteilhaften Eigenschaften nicht durch einen Oxidations- und einen anschließenden Reduktionsprozeß verändert. FIG 2 zeigt in einem vergrößerten Ausschnitt die Beschichtung von einem Nickelnetz 6 bzw. 6'.

Anstatt der Nickelnetze 6, 6' können auch Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche den Vorteil haben, daß deren thermischer Längenausdehnungskoeffizient an die Komponenten der Hochtemperatur-Brennstoffzelle angepaßt ist.

Die Schutzschicht 7 besteht aus Chromcarbid, welches den Vorteil hat, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektorplatten 5, 5' eingeleitet werden, verschwindende Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden.

Als Chromcarbide können C_3C_2 , CrC , Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ oder ähnliche Chromcarbide mit unterschiedlichen Wertigkeiten verwendet werden.

Die Schutzschicht 7 weist eine Dicke d von $0,1 - 10 \mu m$ auf, um eine Oxidation zuverlässig zu verhindern und die Flexibilität der Nickelnetze 6, 6' kaum zu beeinflussen.

Patentansprüche

1. Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist,
dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.
2. Brennstoffzelle nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht (7) beschichtet ist.
3. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Nickelnetz ist.
4. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Edelstahlnetz ist.
5. Brennstoffzelle nach den Ansprüchen 2 - 4,
dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) Chrom enthält.
6. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche 2 - 5,
dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) aus Chromcarbid besteht.
7. Brennstoffzelle nach Anspruch 6,
dadurch gekennzeichnet, daß als Chromcarbid C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet wird.

8. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) eine Dicke (d) von etwa 0,1 - 10 μm aufweist.

Zusammenfassung

Oxidationsgeschützte elektrische Kontaktierung auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle

5

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist, wobei mindestens ein metallisches Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.

10

FIG 1

15

2

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

Absender: INTERNATIONALE RECHERCHENBEHÖRDE

PCT

An
SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT
Postfach 22 16 34
80506 München
GERMANY

09. NOV. 2000
06. NOV. 2000
ZT GG VM Mch P/R

Eing. 06. Nov. 2000

GR
Frst

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERMITTLUNG DES
INTERNATIONALEN RECHERCHENBERICHTS
ODER DER ERKLÄRUNG

(Regel 44.1 PCT)

Absendedatum
(Tag/Monat/Jahr)

07/11/2000

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts

99P3470P

WEITERES VORGEHEN

siehe Punkte 1 und 4 unten

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/02071

Internationales Anmeldedatum

(Tag/Monat/Jahr)

26/06/2000

Anmelder

SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT

1. ☒ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß der internationale Recherchenbericht erstellt wurde und ihm hiermit übermittelt wird.

Einreichung von Änderungen und einer Erklärung nach Artikel 19:

Der Anmelder kann auf eigenen Wunsch die Ansprüche der internationalen Anmeldung ändern (siehe Regel 46):

Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Die Frist zur Einreichung solcher Änderungen beträgt üblicherweise zwei Monate ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts; weitere Einzelheiten sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

Wo sind Änderungen einzureichen?

Unmittelbar beim Internationalen Büro der WIPO, 34, CHEMIN des Colombettes, CH-1211 Genf 20,
Telefaxnr.: (41-22) 740.14.35

Nähere Hinweise sind den Anmerkungen auf dem Beiblatt zu entnehmen.

2. ☐ Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß kein internationaler Recherchenbericht erstellt wird und daß ihm hiermit die Erklärung nach Artikel 17(2)a) übermittelt wird.

3. ☐ Hinsichtlich des Widerspruchs gegen die Entrichtung einer zusätzlichen Gebühr (zusätzlicher Gebühren) nach Regel 40.2 wird dem Anmelder mitgeteilt, daß

☐ der Widerspruch und die Entscheidung hierüber zusammen mit seinem Antrag auf Übermittlung des Wortlauts sowohl des Widerspruchs als auch der Entscheidung hierüber an die Bestimmungsbüros dem Internationalen Büro übermittelt worden sind.

☐ noch keine Entscheidung über den Widerspruch vorliegt; der Anmelder wird benachrichtigt, sobald eine Entscheidung getroffen wurde.

4. Weiteres Vorgehen: Der Anmelder wird auf folgendes aufmerksam gemacht:

Kurz nach Ablauf von 18 Monaten seit dem Prioritätsdatum wird die internationale Anmeldung vom Internationalen Büro veröffentlicht. Will der Anmelder die Veröffentlichung verhindern oder auf einen späteren Zeitpunkt verschieben, so muß gemäß Regel 90 bis bzw. 90^{bis} 3 vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung eine Erklärung über die Zurücknahme der internationalen Anmeldung oder des Prioritätsanspruchs beim Internationalen Büro eingehen.

Innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum ist ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung einzureichen, wenn der Anmelder den Eintritt in die nationale Phase bis zu 30 Monaten seit dem Prioritätsdatum (in manchen Ämtern sogar noch länger) verschieben möchte.

Innerhalb von 20 Monaten seit dem Prioritätsdatum muß der Anmelder die für den Eintritt in die nationale Phase vorgeschriebenen Handlungen vor allen Bestimmungsbüros vornehmen, die nicht innerhalb von 19 Monaten seit dem Prioritätsdatum in der Anmeldung oder einer nachträglichen Auswahlklärung ausgewählt wurden oder nicht ausgewählt werden konnten, da für sie Kapitel II des Vertrages nicht verbindlich ist.

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde



Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL-2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Maria Van der Hoeven

Diese Anmerkungen sollen grundlegende Hinweise zur Einreichung von Änderungen gemäß Artikel 19 geben. Diesen Anmerkungen liegen die Erfordernisse des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens (PCT), der Ausführungsordnung und der Verwaltungsrichtlinien zu diesem Vertrag zugrunde. Bei Abweichungen zwischen diesen Anmerkungen und obengenannten Texten sind letztere maßgebend. Nähere Einzelheiten sind dem PCT-Leitfaden für Anmelder, einer Veröffentlichung der WIPO, zu entnehmen.

Die in diesen Anmerkungen verwendeten Begriffe "Artikel", "Regel" und "Abschnitt" beziehen sich jeweils auf die Bestimmungen des PCT-Vertrags, der PCT-Ausführungsordnung bzw. der PCT-Verwaltungsrichtlinien.

HINWEISE ZU ÄNDERUNGEN GEMÄSS ARTIKEL 19

Nach Erhalt des internationalen Recherchenberichts hat der Anmelder die Möglichkeit, einmal die Ansprüche der internationalen Anmeldung zu ändern. Es ist jedoch zu betonen, daß, da alle Teile der internationalen Anmeldung (Ansprüche, Beschreibung und Zeichnungen) während des internationalen vorläufigen Prüfungsverfahrens geändert werden können, normalerweise keine Notwendigkeit besteht, Änderungen der Ansprüche nach Artikel 19 einzureichen, außer wenn der Anmelder z.B. zum Zwecke eines vorläufigen Schutzes die Veröffentlichung dieser Ansprüche wünscht oder ein anderer Grund für eine Änderung der Ansprüche vor ihrer internationalen Veröffentlichung vorliegt. Weiterhin ist zu beachten, daß ein vorläufiger Schutz nur in einigen Staaten erhältlich ist.

Welche Teile der internationalen Anmeldung können geändert werden?

Im Rahmen von Artikel 19 können nur die Ansprüche geändert werden.

In der internationalen Phase können die Ansprüche auch nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert (oder nochmals geändert) werden. Die Beschreibung und die Zeichnungen können nur nach Artikel 34 vor der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde geändert werden.

Beim Eintritt in die nationale Phase können alle Teile der internationalen Anmeldung nach Artikel 28 oder gegebenenfalls Artikel 41 geändert werden.

Bis wann sind Änderungen einzureichen?

Innerhalb von zwei Monaten ab der Übermittlung des internationalen Recherchenberichts oder innerhalb von sechzehn Monaten ab dem Prioritätsdatum, je nachdem, welche Frist später abläuft. Die Änderungen gelten jedoch als rechtzeitig eingereicht, wenn sie dem Internationalen Büro nach Ablauf der maßgebenden Frist, aber noch vor Abschluß der technischen Vorbereitungen für die internationale Veröffentlichung (Regel 46.1) zugehen.

Wo sind die Änderungen nicht einzureichen?

Die Änderungen können nur beim Internationalen Büro, nicht aber beim Anmeldeamt oder der internationalen Recherchenbehörde eingereicht werden (Regel 46.2).

Falls ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung eingereicht wurde/wird, siehe unten.

In welcher Form können Änderungen erfolgen?

Eine Änderung kann erfolgen durch Streichung eines oder mehrerer ganzer Ansprüche, durch Hinzufügung eines oder mehrerer neuer Ansprüche oder durch Änderung des Wortlauts eines oder mehrerer Ansprüche in der eingereichten Fassung.

Für jedes Anspruchsblatt, das sich aufgrund einer oder mehrerer Änderungen von dem ursprünglich eingereichten Blatt unterscheidet, ist ein Ersatzblatt einzureichen.

Alle Ansprüche, die auf einem Ersatzblatt erscheinen, sind mit arabischen Ziffern zu numerieren. Wird ein Anspruch gestrichen, so brauchen die anderen Ansprüche nicht neu numeriert zu werden. Im Fall einer Neunumerierung sind die Ansprüche fortlaufend zu numerieren (Verwaltungsrichtlinien, Abschnitt 205 b)).

Die Änderungen sind in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Welche Unterlagen sind den Änderungen beizufügen?

Begleitschreiben (Abschnitt 205 b)):

Die Änderungen sind mit einem Begleitschreiben einzureichen.

Das Begleitschreiben wird nicht zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht. Es ist nicht zu verwechseln mit der "Erklärung nach Artikel 19(1)" (siehe unten, "Erklärung nach Artikel 19 (1)").

Das Begleitschreiben ist nach Wahl des Anmelders in englischer oder französischer Sprache abzufassen. Bei englischsprachigen internationalen Anmeldungen ist das Begleitschreiben aber ebenfalls in englischer, bei französischsprachigen internationalen Anmeldungen in französischer Sprache abzufassen.

ANMERKUNGEN ZU FORMBLATT PCT/ISA/220 (Fortsetzung)

Im Begleitschreiben sind die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen anzugeben. So ist insbesondere zu jedem Anspruch in der internationalen Anmeldung anzugeben (gleichlautende Angaben zu verschiedenen Ansprüchen können zusammengefaßt werden), ob

- i) der Anspruch unverändert ist;
- ii) der Anspruch gestrichen worden ist;
- iii) der Anspruch neu ist;
- iv) der Anspruch einen oder mehrere Ansprüche in der eingereichten Fassung ersetzt;
- v) der Anspruch auf die Teilung eines Anspruchs in der eingereichten Fassung zurückzuführen ist.

Im folgenden sind Beispiele angegeben, wie Änderungen im Begleitschreiben zu erläutern sind:

1. [Wenn anstelle von ursprünglich 48 Ansprüchen nach der Änderung einiger Ansprüche 51 Ansprüche existieren]:
"Die Ansprüche 1 bis 29, 31, 32, 34, 35, 37 bis 48 werden durch geänderte Ansprüche gleicher Numerierung ersetzt; Ansprüche 30, 33 und 36 unverändert; neue Ansprüche 49 bis 51 hinzugefügt."
2. [Wenn anstelle von ursprünglich 15 Ansprüchen nach der Änderung aller Ansprüche 11 Ansprüche existieren]:
"Geänderte Ansprüche 1 bis 11 treten an die Stelle der Ansprüche 1 bis 15."
3. [Wenn ursprünglich 14 Ansprüche existierten und die Änderungen darin bestehen, daß einige Ansprüche gestrichen werden und neue Ansprüche hinzugefügt werden]:
Ansprüche 1 bis 6 und 14 unverändert; Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt. "Oder" Ansprüche 7 bis 13 gestrichen; neue Ansprüche 15, 16 und 17 hinzugefügt; alle übrigen Ansprüche unverändert."
4. [Wenn verschiedene Arten von Änderungen durchgeführt werden]:
"Ansprüche 1-10 unverändert; Ansprüche 11 bis 13, 18 und 19 gestrichen; Ansprüche 14, 15 und 16 durch geänderten Anspruch 14 ersetzt; Anspruch 17 in geänderte Ansprüche 15, 16 und 17 unterteilt; neue Ansprüche 20 und 21 hinzugefügt."

"Erklärung nach Artikel 19(1)" (Regel 46.4)

Den Änderungen kann eine Erklärung beigelegt werden, mit der die Änderungen erläutert und ihre Auswirkungen auf die Beschreibung und die Zeichnungen dargelegt werden (die nicht nach Artikel 19 (1) geändert werden können).

Die Erklärung wird zusammen mit der internationalen Anmeldung und den geänderten Ansprüchen veröffentlicht.

Sie ist in der Sprache abzufassen, in der die internationale Anmeldung veröffentlicht wird.

Sie muß kurz gehalten sein und darf, wenn in englischer Sprache abgefaßt oder ins Englische übersetzt, nicht mehr als 500 Wörter umfassen.

Die Erklärung ist nicht zu verwechseln mit dem Begleitschreiben, das auf die Unterschiede zwischen den Ansprüchen in der eingereichten Fassung und den geänderten Ansprüchen hinweist, und ersetzt letzteres nicht. Sie ist auf einem gesonderten Blatt einzureichen und in der Überschrift als solche zu kennzeichnen, vorzugsweise mit den Worten "Erklärung nach Artikel 19 (1)".

Die Erklärung darf keine herabsetzenden Äußerungen über den internationalen Recherchenbericht oder die Bedeutung von in dem Bericht angeführten Veröffentlichungen enthalten. Sie darf auf im internationalen Recherchenbericht angeführte Veröffentlichungen, die sich auf einen bestimmten Anspruch beziehen, nur im Zusammenhang mit einer Änderung dieses Anspruchs Bezug nehmen.

Auswirkungen eines bereits gestellten Antrags auf internationale vorläufige Prüfung

Ist zum Zeitpunkt der Einreichung von Änderungen nach Artikel 19 bereits ein Antrag auf internationale vorläufige Prüfung gestellt worden, so sollte der Anmelder in seinem Interesse gleichzeitig mit der Einreichung der Änderungen beim Internationalen Büro auch eine Kopie der Änderungen bei der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde einreichen (siehe Regel 62.2 a), erster Satz).

Auswirkungen von Änderungen hinsichtlich der Übersetzung der internationalen Anmeldung beim Eintritt in die nationale Phase

Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß bei Eintritt in die nationale Phase möglicherweise anstatt oder zusätzlich zu der Übersetzung der Ansprüche in der eingereichten Fassung eine Übersetzung der nach Artikel 19 geänderten Ansprüche an die bestimmten/ausgewählten Ämter zu übermitteln ist.

Nähere Einzelheiten über die Erfordernisse jedes bestimmten/ausgewählten Amtes sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
18. Januar 2001 (18.01.2001)

PCT

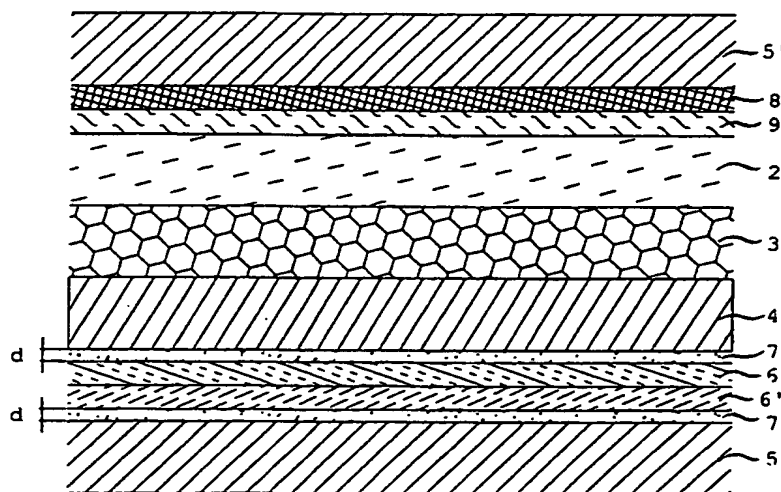
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/04981 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: **H01M 8/02**
- (21) Internationales Aktenzeichen: **PCT/DE00/02071**
- (22) Internationales Anmeldedatum:
26. Juni 2000 (26.06.2000)
- (25) Einreichungssprache: **Deutsch**
- (26) Veröffentlichungssprache: **Deutsch**
- (30) Angaben zur Priorität:
199 32 192.2 9. Juli 1999 (09.07.1999) **DE**
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von
US): **SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];**
Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).
- (72) Erfinder; und
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **JANSING, Thomas**
[DE/DE]; Kilianstrasse 46, D-90425 Nürnberg (DE).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: **SIEMENS AKTIENGE-
SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München**
(DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): **AU, CA, JP, US.**
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): **europäisches Patent (AT,
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, SE).**
- Veröffentlicht:
— Mit internationalem Recherchenbericht.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: **ELECTRICAL BONDING PROTECTED AGAINST OXIDATION ON THE GAS COMBUSTION SIDE OF A HIGH TEMPERATURE FUEL CELL**

(54) Bezeichnung: **OXIDATIONSGESCHÜTZTE ELEKTRISCHE KONTAKTIERUNG AUF DER BRENNGASSEITE DER HOCHTEMPERATUR-BRENNSTOFFZELLE**



(57) Abstract: The invention concerns a fuel cell (1) or a stack of fuel cells comprising cathodes (2), electrolytes (3), anodes (4) and interconnection plates (5, 5') arranged in parallel layers, and at least a metal lattice (6, 6') inserted between the anode (4) and the interconnection plate (5) for a flexible bonding. The inventive fuel cell is characterised in that the metal lattice (6, 6') is protected against oxidation.

(57) Zusammenfassung: Eine Brennstoffzelle (1) bzw. ein Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist, wobei mindestens ein metallisches Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.

WO 01/04981 A1



— Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

Beschreibung

Oxidationsgeschützte elektrische Kontaktierung auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle

5

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den weiteren Merkmalen des Oberbegriffs des Patentanspruchs 1.

- 10 Es ist bekannt, daß die Hintereinanderschaltung mehrerer Brennstoffzellen einen Brennstoffzellenstapel ergibt (in der Fachliteratur auch als Brennstoffzellenstack bezeichnet), welcher der Reihenfolge nach aus einer Interkonnektorplatte, einer Schutzschicht, einer Kontaktschicht, einer Kathode, ei-
- 15 nem Elektrolyten, einer Anode, einer weiteren Kontaktschicht sowie einer weiteren Interkonnektorplatte besteht. Die Interkonnektorplatte mit der jeweils aufgespritzten Schutz- und Kontaktschicht bildet eine Einheit. Kathode, Elektrolyt und Anode bilden die Elektrolyt-Elektroden-Einheit. Die entsprechenden Einheiten sind schichtweise parallel aufeinander ge-
- 20 legt sind und sich in der derselben Reihenfolge mehrmals wiederholen.

- Kathode, Elektrolyt und Anode bilden eine Elektrolyt-Elektro-
- 25 den-Einheit. Dabei bildet jeweils eine zwischen benachbarten Interkonnektorplatten liegende Elektrolyt-Elektroden-Einheit mit den beidseitig an der Elektrolyt-Elektroden-Einheit unmittelbar anliegenden Kontakt- und Schutzschichten eine Hochtemperatur-Brennstoffzelle, zu der auch noch die an der
- 30 Schutzschicht bzw. den Kontaktschichten anliegenden Seiten jeder der beiden Interkonnektorplatten gehören. Die Interkonnektorplatten bestehen üblicherweise aus CrFe5 mit 1 % Y-Oxid, einer sogenannten ODS-Legierung.

- 35 In die Interkonnektorplatte sind Gaskanäle eingebracht, durch die zum einen das Brenngas z.B. Wasserstoff oder Methan (Erdgas) und zum anderen Sauerstoff bzw. Luft hindurchgeleitet

wird. Der Wasserstoff wird dabei an die Anodenseite, der Sauerstoff bzw. die Luft an die Kathodenseite geleitet. Die Hindurchleitung dieser Gase geschieht mit relativ geringem Überdruck von kleiner 1 bar.

5

Das planare Konzept der Hochtemperatur-Brennstoffzelle verlangt eine möglichst vollflächige Kontaktierung der Elektroden in beiden Gasräumen. Auf der Kathodenseite wird die Kontaktierung der Elektrode durch eine Kontaktschicht aus La-Perowskit gewährleistet, z.B. $\text{La}_0.8\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$. Dieser Perowskit ist an Luft stabil. Auf der Brenngasseite dagegen gestaltet sich die Kontaktierung der Elektrode, also der Anode, schwieriger. Die vollständige Kontaktierung der Anode ist jedoch wegen der geringen Querleitfähigkeit der Anode notwendig. Die Anode wird im Siebdruckprozeß hergestellt und ist daher nicht vollflächig eben, weshalb eine flexible Kontaktierung erforderlich ist, die sehr gut elektrisch leitend ist und deren Beständigkeit über eine Betriebsdauer von etwa 40.000 h gewährleistet sein muß

20

Der Stand der Technik sieht vor, als flexible Kontaktierungen Nickelnetze einzusetzen. So werden beispielsweise ein feinmaschigeres und ein grobmaschigeres Nickelnetz übereinander gelegt, miteinander punktverschweißt, so daß eine flexible Zwischenlage mit einer guten Kontaktierung geschaffen wird.

25

Als Nachteil hat sich beim Stand der Technik herausgestellt, daß sowohl beim Verlöten der Brennstoffzellenstapel als auch beim Betrieb der Brennstoffzelle bzw. des Brennstoffzellenstacks im direkten Kontaktbereich Nickelnetz/CrFe5 eine Oxidschicht aufwächst, die im nicht stoffschlüssigen Kontakt aus Cr_2O_3 (Cr_xO_y) und im stoffschlüssigen Kontakt wahrscheinlich

30

aus einem CrNi-Spinell besteht. Diese Oxidschichten sind maßgeblich verantwortlich für die zu hohen Serienwiderstände der Hochtemperaturbrennstoffzellen. Die elektrische Leistung wird dadurch stark negativ beeinflusst.

35

Außerdem oxidiert das Nickelnetz beim Verlöten des Brennstoffzellenstacks mit einem Glaslot an Luftatmosphäre an der Oberfläche der Drähte einige μm in das Drahtinnere hinein. Durch die Bildung von Nickel-II-Oxid (NiO), das ein etwa 16 % größeres Volumen als Nickel aufweist, erfolgt eine Dickenzunahme des gesamten Netzpaketes um etwa 10 - 40 μm (je nach Lötbedingungen). Die Dickenzunahme beträgt im oxidierten Bereich des Drahtes mehr als 16 %, da das entstandene NiO porös ist. Bei der Oxidierung versintern die Nickelnetze sowie deren Drähte miteinander. Bei der späteren Reduktion des Nickelnetzes wird die ursprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt bzw. unter Umständen sogar noch reduziert.

Bei dieser Reduzierung versintern die Nickeldrähte miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität als auch eine Reduzierung der Dicke eintritt, die unerwünscht ist. Die Dickenreduzierung kann außerdem zu Kontaktabrissen führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, eine Brennstoffzelle bzw. einen Brennstoffzellenstack mit den Merkmalen des Oberbegriffs des Patentanspruchs 1 derart weiterzubilden, daß die Reduzierung der Dicke und der Flexibilität des/der Nickelnetze(s) vermieden wird, so daß eine möglichst vollständige Kontaktierung der Anode und der Interkonnektorplatte möglich ist.

Diese Aufgabe wird durch die kennzeichnenden Merkmale des Patentanspruchs 1 gelöst. Vorteilhafte Weiterbildungen der Brennstoffzelle ergeben sich aus den Unteransprüchen 2 - 8.

Als Kern der Erfindung wird es angesehen, daß zur flexiblen Kontaktierung zwischen Anode und Interkonnektorplatte mindestens ein metallisches Netz, das oxidationsgeschützt ist, eingefügt ist.

Derartige Netze als Kontaktschicht haben den Vorteil, daß diese nicht mehr oxidieren können, so daß auch die Dickenzunahme entfällt. Indem keine Oxidation stattgefunden hat, ist auch kein Reduktionsvorgang der metallischen Netze notwendig und die damit verbundenen Nachteile, wie z.B. Kontaktabrisse bei der Dickenreduzierung oder Flexibilitätseinbußen, entstehen nicht. Aufgrund des nicht stattfindenden Wechselprozesses Oxidation/Reduktion bleibt die ursprüngliche Dicke und Flexibilität der oxidationsgeschützten Netze erhalten, so daß eine gut kontaktierende Kontaktschicht zwischen Anode und Interkonnektor geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickerreduzierung der metallischen Netze mit fortlaufender Betriebsdauer verhindert.

Zweckmäßigerweise sind die metallischen Netze mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Die metallischen Netze, z.B. Nickelnetze, bleiben auf diese Weise sowohl in ihrer Zusammensetzung als auch in ihren mechanischen und elektrischen Eigenschaften unbeeinflusst, d.h. u.a. sie bleiben weitgehend flexibel, führen keine Dickenänderung herbei und behalten im wesentlichen ihre vorteilhaften Eigenschaften bei. Vorteilhaft ist dabei, daß vor dem Einbringen als flexible Kontaktschicht die metallischen Netze dem Beschichtungsprozeß unterzogen werden. Die Zusammenfügung mit den anderen Bauteilen sowie das Verlöten ist anschließend in üblicher Weise durchzuführen.

Als metallische Netze können beschichtete Nickelnetze vorgesehen sein. Die Nickelnetze erfüllen dabei die Anforderungen hinsichtlich der Flexibilität als auch der elektrischen Leitfähigkeit.

Als metallische Netze können auch beschichtete Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche die Eigenschaft haben, daß sie nur oberflächlich bis in eine Tiefe von ca. 5 μm oxidieren. Die Edelstahlnetze sind dabei ebenfalls mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht beschichtet. Ein weiterer Vorteil der

Edelstahlnetze besteht darin, daß deren thermischer Ausdehnungskoeffizient an das thermische Verhalten der Komponenten des Brennstoffzellenstacks gut angepaßt ist. Vor allem beim Hochtemperaturbetrieb der Brennstoffzelle ist diese Eigenschaft von erheblichem Vorteil.

Vorteilhafterweise enthält die Schutzschicht Chrom und ist damit an die chemische Zusammensetzung der Interkonnektorplatte angepaßt.

10

Die Schutzschicht besteht vorteilhafterweise aus Chromcarbid, welches in hohem Maße elektrisch leitend ist und sehr gut am metallischen Netz haftet. Eine Chromcarbidschicht ist außerdem sehr korrosionsbeständig gegen entsprechende Sauerstoffpartialdrücke auf der Brenngasseite. Ferner sind diese Schichten stabil unter Verwendung von Methan bzw. kohlestämmigen Gasen, welche spätere Einsatzmedien auf der Brenngasseite der Hochtemperatur-Brennstoffzelle sind.

Ein weiterer Vorteil der Beschichtung mit Chromcarbid besteht darin, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektoplatten hindurch geleitet werden, geringe Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden. Die Chromcarbidschicht ist daher thermodynamisch besonders günstig.

Als Chromcarbid können z.B. C_3C_2 , CrC , Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet werden.

30

Es ist auch möglich, daß die Schutzschicht der metallischen Netze aus Chromnitrid besteht.

Zweckmäßigerweise weist die Schutzschicht eine Dicke d von 0,1 - 10 μm auf, so daß einerseits ein ausreichender Oxidationsschutz vorhanden ist und andererseits die Flexibilität der metallischen Netze kaum eingeschränkt wird.

35

Die Erfindung ist anhand eines vorteilhaften Ausführungsbeispiels in den Zeichnungsfiguren näher erläutert. Diese zeigen:

5 FIG 1 eine schematische Querschnittsdarstellung der Schichten einer Brennstoffzelle sowie

FIG 2 eine vergrößerte, schematische Querschnittsdarstellung eines beschichteten Nickelnetzes.

10

Der Brennstoffzellenstapel der Brennstoffzelle 1 entsprechend der schematischen Darstellung in FIG 1 besteht aus einer Interkonnektorplatte 5', einer Schutzschicht 8, einer Kontaktschicht 9, einer Kathode 2, einem Elektrolyten 3, einer Anode 4, zwei aufeinanderliegenden Nickelnetzen 6, 6' sowie einer Interkonnektorplatte 5, wobei diese Bauteile schichtweise aufeinander parallel angeordnet sind. Das Nickelnetz 6 ist dünner als das Nickelnetz 6'.

15

20 Die Nickelnetze 6, 6' sind oxidationsgeschützt, um eine Oxidation dieser Netze, welche üblicherweise beim Verlöten des gesamten Brennstoffzellenstacks auftritt, zu vermeiden. Die Oxidation der Nickelnetze ist mit einer Dickenzunahme verknüpft, wobei bei dem späteren Reduktionsvorgang die ursprüngliche Dicke des Netzpaketes wieder erzeugt wird. Dies kann zu Kontaktabrissen führen, welche Komponentenschädigungen erzeugen können. Außerdem versintern die Nickeldrähte nach der Reduzierung miteinander, so daß eine Reduktion der angestrebten Flexibilität resultiert. Die oxidationsgeschützten Netze vermeiden demnach den Oxidations-/Reduktionsprozeß des Netzpaketes und die damit verbundenen Nachteile. Die ursprüngliche Flexibilität sowie die Dicke der Netze kann beibehalten werden, so daß eine vollflächige Kontaktierung von Anode 4 und der Kontaktschicht der Nickelnetze 6, 6' sowie der Interkonnektorplatte 5 geschaffen wird. Außerdem wird eine Dickenreduzierung der Nickelnetze 6, 6' beim Betrieb der Brennstoffzelle 1 verhindert.

30

35

Wie in FIG 1 und FIG 2 verdeutlicht, sind die Nickelnetze 6, 6' mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht 7 beschichtet. Diese Beschichtung kann vor dem Zusammenbau der einzelnen Komponenten vorgenommen werden. Die Nickelnetze 6, 6' werden somit in ihren ursprünglichen, vorteilhaften Eigenschaften nicht durch einen Oxidations- und einen anschließenden Reduktionsprozeß verändert. FIG 2 zeigt in einem vergrößerten Ausschnitt die Beschichtung von einem Nickelnetz 6 bzw. 6'.

Anstatt der Nickelnetze 6, 6' können auch Edelstahlnetze vorgesehen sein, welche den Vorteil haben, daß deren thermischer Längenausdehnungskoeffizient an die Komponenten der Hochtemperatur-Brennstoffzelle angepaßt ist.

Die Schutzschicht 7 besteht aus Chromcarbid, welches den Vorteil hat, daß bei Verwendung von kohlestämmigen Gasen, die durch die Gaskanäle der Anodenseite der Interkonnektorplatten 5, 5' eingeleitet werden, verschwindende Bestandteile aus den Schutzschichten durch die kohlestämmigen Gase wieder nachgebessert werden.

Als Chromcarbide können C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ oder ähnliche Chromcarbide mit unterschiedlichen Wertigkeiten verwendet werden.

Die Schutzschicht 7 weist eine Dicke d von 0,1 - 10 μm auf, um eine Oxidation zuverlässig zu verhindern und die Flexibilität der Nickelnetze 6, 6' kaum zu beeinflussen.

Patentansprüche

1. Brennstoffzelle (1) bzw. Brennstoffzellenstack mit schichtweise parallel angeordneten Kathoden (2), Elektrolyten (3), Anoden (4) und Interkonnektorplatten (5, 5') sowie mindestens einem metallischen Netz (6, 6'), das zwischen Anode (4) und Interkonnektorplatte (5) zur flexiblen Kontaktierung eingefügt ist,
dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') oxidationsgeschützt ist.
2. Brennstoffzelle nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine metallische Netz (6, 6') mit einer oxidationsresistenten Schutzschicht (7) beschichtet ist.
3. Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Nickelnetz ist.
4. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche,
dadurch gekennzeichnet, daß das Netz (6, 6') ein beschichtetes Edelstahlnetz ist.
5. Brennstoffzelle nach den Ansprüchen 2 - 4,
dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) Chrom enthält.
6. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche 2 - 5,
dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) aus Chromcarbid besteht.
7. Brennstoffzelle nach Anspruch 6,
dadurch gekennzeichnet, daß als Chromcarbid C_3C_2 , CrC, Cr_7C_3 oder $Cr_{23}C_6$ verwendet wird.

8. Brennstoffzelle nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Schutzschicht (7) eine Dicke (d) von etwa 0,1 - 10 μm aufweist.

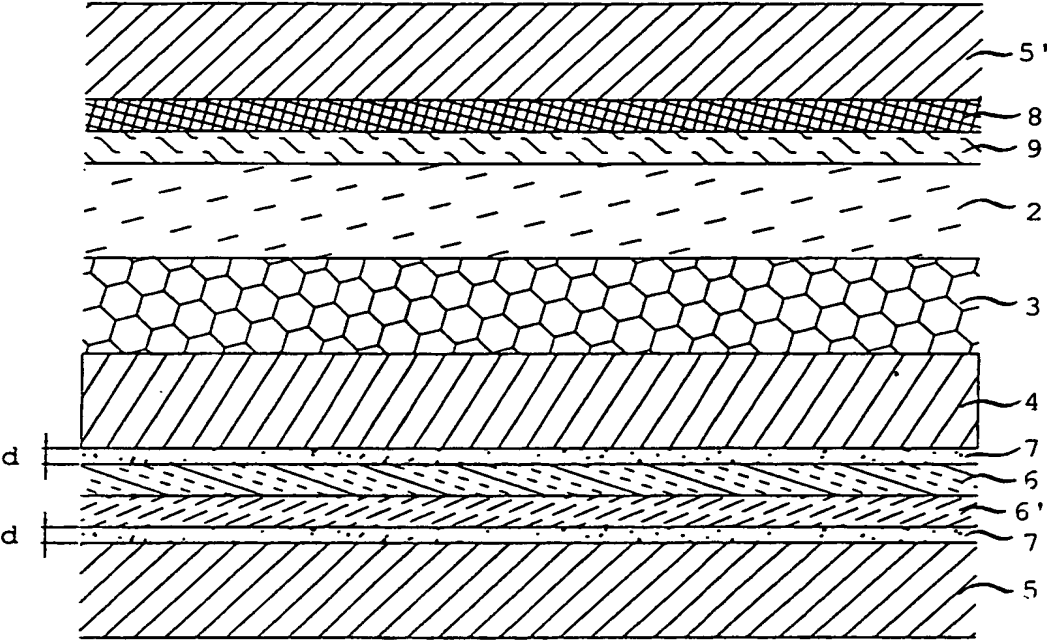


FIG. 1

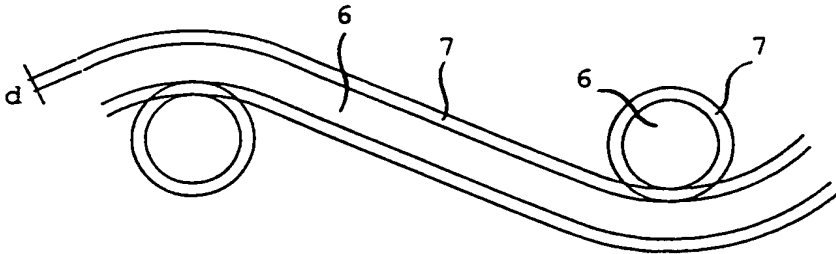


FIG. 2

1

2

3

4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte Application No

PCT/DE 00/02071

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 H01M8/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 42 37 602 A (SIEMENS AG) 11 May 1994 (1994-05-11) claims 1,3,6,7,11 column 3, line 45 - line 62 column 5, line 41 - line 51 column 7, line 6 - line 33	1,2,4
Y	---	5-8
Y	DE 298 02 444 U (SIEMENS AG) 1 April 1999 (1999-04-01) claims 1-4; figure 1 page 3, paragraph 5 - paragraph 6 page 2, paragraph 3	5-8
X	---	1-3,5-8
A	DE 195 17 443 A (MOTOREN TURBINEN UNION) 14 November 1996 (1996-11-14) claims 1,2 ---	4
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 October 2000

Date of mailing of the international search report

07/11/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3018

Authorized officer

D'hondt, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 00/02071

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 338 823 A (TOA NENRYO KOGYO KK) 25 October 1989 (1989-10-25) page 6, line 41 - line 46 ----	4
A	DE 40 16 157 A (ASEA BROWN BOVERI) 13 December 1990 (1990-12-13) column 10, line 28 -column 11, line 18; example 1 ----	1
P,A	DE 198 36 352 A (SIEMENS AG) 17 February 2000 (2000-02-17) column 3, line 43 - line 48; claims 1,2; figure 1 ----	1,3
A	WO 99 13522 A (JAFFREY DONALD ;CERAMIC FUEL CELLS LTD (AU)) 18 March 1999 (1999-03-18) page 11, line 25 - line 28 ----	3
A	US 5 064 734 A (NAZMY MOHAMED) 12 November 1991 (1991-11-12) claim 1 -----	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/02071

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4237602 A	11-05-1994	WO 9411913 A EP 0667042 A JP 8502851 T NO 951780 A	26-05-1994 16-08-1995 26-03-1996 05-05-1995
DE 29802444 U	01-04-1999	AU 3246899 A WO 9941795 A	30-08-1999 19-08-1999
DE 19517443 A	14-11-1996	NONE	
EP 0338823 A	25-10-1989	JP 2177265 A JP 2037669 A DE 68917192 D DE 68917192 T US 4950562 A JP 2050983 A JP 2604437 B	10-07-1990 07-02-1990 08-09-1994 17-11-1994 21-08-1990 20-02-1990 30-04-1997
DE 4016157 A	13-12-1990	NONE	
DE 19836352 A	17-02-2000	AU 6461499 A WO 0010214 A	06-03-2000 24-02-2000
WO 9913522 A	18-03-1999	AU 8964898 A EP 1019974 A	29-03-1999 19-07-2000
US 5064734 A	12-11-1991	EP 0424732 A JP 3155046 A	02-05-1991 03-07-1991

✓

0)

•

3

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 H01M8/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 42 37 602 A (SIEMENS AG) 11. Mai 1994 (1994-05-11) Ansprüche 1,3,6,7,11 Spalte 3, Zeile 45 - Zeile 62 Spalte 5, Zeile 41 - Zeile 51 Spalte 7, Zeile 6 - Zeile 33	1,2,4
Y	----	5-8
Y	DE 298 02 444 U (SIEMENS AG) 1. April 1999 (1999-04-01) Ansprüche 1-4; Abbildung 1 Seite 3, Absatz 5 - Absatz 6 Seite 2, Absatz 3	5-8
X	----	1-3,5-8
A	DE 195 17 443 A (MOTOREN TURBINEN UNION) 14. November 1996 (1996-11-14) Ansprüche 1,2	4

	-/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindenderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindenderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

31. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

07/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 338 823 A (TOA NENRYO KOGYO KK) 25. Oktober 1989 (1989-10-25) Seite 6, Zeile 41 - Zeile 46 ----	4
A	DE 40 16 157 A (ASEA BROWN BOVERI) 13. Dezember 1990 (1990-12-13) Spalte 10, Zeile 28 - Spalte 11, Zeile 18; Beispiel 1 ----	1
P,A	DE 198 36 352 A (SIEMENS AG) 17. Februar 2000 (2000-02-17) Spalte 3, Zeile 43 - Zeile 48; Ansprüche 1,2; Abbildung 1 ----	1,3
A	WO 99 13522 A (JAFFREY DONALD ; CERAMIC FUEL CELLS LTD (AU)) 18. März 1999 (1999-03-18) Seite 11, Zeile 25 - Zeile 28 ----	3
A	US 5 064 734 A (NAZMY MOHAMED) 12. November 1991 (1991-11-12) Anspruch 1 -----	1

INTERNATIONALER RESEARCHBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationale Dokumentenzeichen

PCT/DE 00/02071

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4237602 A	11-05-1994	WO 9411913 A EP 0667042 A JP 8502851 T NO 951780 A	26-05-1994 16-08-1995 26-03-1996 05-05-1995
DE 29802444 U	01-04-1999	AU 3246899 A WO 9941795 A	30-08-1999 19-08-1999
DE 19517443 A	14-11-1996	KEINE	
EP 0338823 A	25-10-1989	JP 2177265 A JP 2037669 A DE 68917192 D DE 68917192 T US 4950562 A JP 2050983 A JP 2604437 B	10-07-1990 07-02-1990 08-09-1994 17-11-1994 21-08-1990 20-02-1990 30-04-1997
DE 4016157 A	13-12-1990	KEINE	
DE 19836352 A	17-02-2000	AU 6461499 A WO 0010214 A	06-03-2000 24-02-2000
WO 9913522 A	18-03-1999	AU 8964898 A EP 1019974 A	29-03-1999 19-07-2000
US 5064734 A	12-11-1991	EP 0424732 A JP 3155046 A	02-05-1991 03-07-1991

11

12